

Etude par plans d'expériences de la génération de gouttelettes obtenues par diélectrophorèse liquide (LDEP)

B. Daunay^a, P. Lambert^{a*}, D. Collard^a et H. Fujita^b

a. Laboratory of Integrated Micro Mechatronic Systems (LIMMS),
CNRS/Institute of Industrial Science

b. Fujita Lab

The University of Tokyo, 4-6-1 Komaba, Meguro-ku, Tokyo, 153-8505 Japan

. Corresponding author: plambert@iis.u-tokyo.ac.jp

Résumé :

Ce travail présente une contribution expérimentale au procédé appelé diélectrophorèse liquide (LDEP), combinant champ électrique et instabilité de Rayleigh pour générer des gouttes de 3 pL. En s'appuyant sur la méthodologie des plans d'expériences, ce travail quantifie l'influence sur la tension électrique des paramètres de tension surface (50-73mN/m), d'angle de contact (40 – 110°) et de fréquence du signal électrique (50-200kHz). Il montre expérimentalement que la mouillabilité de la couche superficielle a un effet significatif sur la tension électrique minimale à appliquer pour générer ces gouttes. On envisage d'appliquer ces résultats au micro-assemblage et à l'analyse biologique, pour la séparation de composants à l'aide de microgouttes.

Abstract :

This paper experimentally contributes to the so-called LDEP process (liquid dielectrophoresis). This technique relies on the combination of an electric field and the Rayleigh hydrodynamical instability to generate 3 pL droplets. Based on the methodology of design of experiments, we report the influence of the surface tension (50-73mN/m), the contact angle (40 – 110°) and the frequency of the electrical signal (50-200kHz). We show the significant influence of the top layer wettability on the minimal electrical voltage required to generate droplets. We aim at applying these results to the separation of micron-sized industrial components or biological cells.

Mots clefs : LDEP, Plans d'expériences, micro-gouttelettes

1 Introduction

Parmi de nombreux outils microfluidiques, le procédé appelé diélectrophorèse liquide (liquid dielectrophoresis dans la littérature anglo-saxonne) permet de générer des gouttes de diamètre micrométrique en environnement ouvert. Par opposition à la microfluidique en canaux dite en environnement fermé, on parle d'environnement ouvert pour décrire les applications où les gouttes sont à l'air libre, posées sur un substrat.

Ce procédé permet de générer des chapelets de gouttelettes d'un diamètre de l'ordre d'une dizaine de microns, pour des conductivités jusqu'à 10mN/m et des tensions de l'ordre de 200 V pic à pic. Deux domaines d'activité sont visés : la séparation d'objets biologiques (ADN, cellules...) et la séparation de composants dont la taille caractéristique est de l'ordre de la taille des gouttelettes générées.

La section 2 de cet article présente le dispositif expérimental et son principe, en particulier la nécessité d'appliquer une tension électrique pour générer les gouttelettes. La section 3 présente l'état de l'art

en termes de modèles prédisant la valeur minimale de cette tension, sous laquelle il n'est pas possible de générer les gouttelettes. A l'issue de cette section, nous décrivons l'objet de notre contribution, qui est l'étude de l'effet de la mouillabilité de la couche superficielle sur la tension électrique minimale. Nous présentons notre méthodologie expérimentale à la section 4 et nos résultats à la section 5. Viennent ensuite à la section 6 les conclusions (la mouillabilité de la couche superficielle est en effet un paramètre qui influence significativement la tension électrique nécessaire pour générer les gouttes) et les perspectives théoriques, qui sont de proposer une correction analytique aux modèles de la littérature pour prendre en compte la mouillabilité de la couche superficielle.

2 Dispositif expérimental et principe du dispositif

Le dispositif expérimental est constitué d'un substrat isolant sur lequel on dépose deux électrodes planes parallèles de largeur w séparées d'une distance g (figure 1), le tout recouvert d'une couche diélectrique, non représentée à la figure 1. L'application d'une tension alternative de l'ordre de 200V (toutes les tensions sont données en valeur pic à pic dans cet article) et d'une centaine de kHz permet de générer un fin filet de liquide (appelé rivulet ou protrusion dans la littérature anglo-saxonne), qui s'étire entre les électrodes. Lorsqu'on cesse l'application de la tension électrique, l'instabilité hydrodynamique de Rayleigh conduit au fractionnement de ce filet en une multitude de gouttelettes espacées de la longueur d'onde associée à l'instabilité (figures 1b et 2). Les deux mécanismes (génération puis fractionnement du filet) sont illustrés aux figures 2a-c d'une part et figures 2d-g d'autre part.

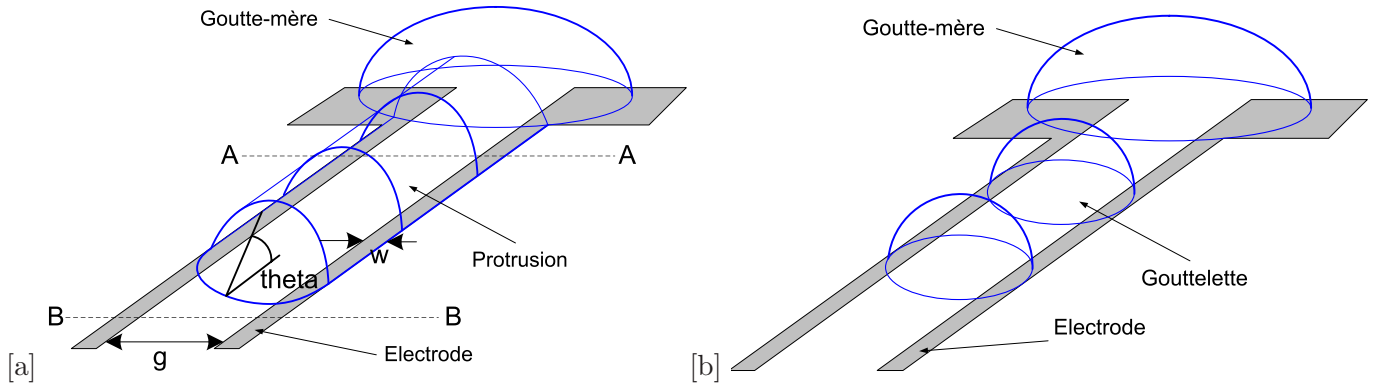


FIG. 1 – (a) Sous l'effet d'une tension électrique appliquée entre les électrodes, on observe l'étirement d'un filet de liquide - aussi appelé protrusion - depuis une goutte-mère (les plans de coupe A-A et B-B servent à présenter le schéma électrique de la figure 3); (b) fractionnement du filet en gouttelettes sous l'effet de l'instabilité de Rayleigh

3 Etat de l'art et modèles

La modélisation statique de la génération du filet repose sur la description de la force motrice d'origine électrique et la force résistive induite par la tension de surface (une modélisation dynamique introduirait en outre l'effet de la viscosité). La littérature met en avant les paramètres suivants : tension de surface γ , viscosité η , conductivité σ et permittivité du liquide ϵ_L , épaisseur d et permittivité ϵ_d de la couche diélectrique, fréquence f et tension V du signal électrique, largeur w des électrodes et jeu g les séparant. Young [4] présente différentes techniques pour modéliser la force électrostatique générant le filet, notamment la formulation de Korteweg-Helmholtz (ajout d'une force volumique aux équations de Navier-Stokes) et une approche basée sur le tenseur des contraintes de Maxwell. Il introduit la distinction entre les effets d'électromouillage et de diélectrophorèse, l'électromouillage étant intimement lié au caractère conducteur du liquide, qui agit comme une électrode, et la diélectrophorèse étant liée aux propriétés diélectriques du liquide. Ces deux effets permettent une explication intuitive de l'étirement du filet, par l'augmentation de la capacité du système (voir le schéma électrique équivalent à la figure 3). Mathématiquement, la dérivée de l'énergie électrostatique stockée dans la couche diélectrique

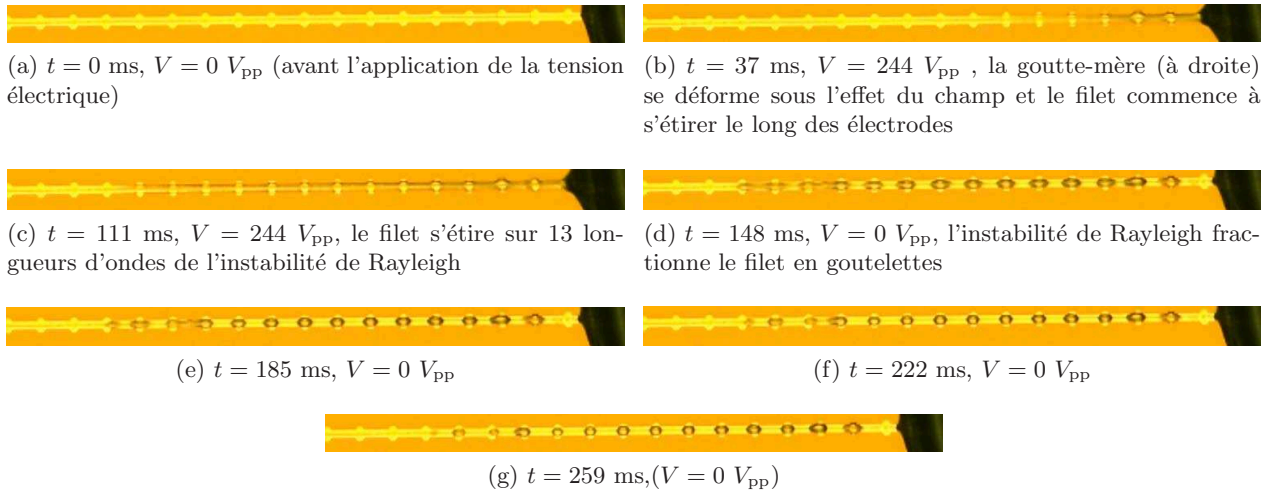


FIG. 2 – Photos successives de la génération de gouttelettes de $15\ \mu\text{m}$ \varnothing (vu de haut, on distingue en noir à droite de chaque photo une portion de la goutte-mère, ainsi que le trait clair horizontal au centre de chaque photo, qui représente la paire d'électrodes). La tension de $244\ V_{pp}$ AC est appliquée aux photos (b) and (c), à une fréquence de $f = 100\ \text{kHz}$ et pendant une durée de 100 ms. Les autres paramètres sont une largeur d'électrodes de $w = 6\ \mu\text{m}$, séparées de $g = 3\ \mu\text{m}$. La couche superficielle est constituée de 25nm de Teflon et le liquide a une tension de surface de 55mN/m

représente la force d'électromouillage (les tensions sont définies à la figure 3) :

$$F_{\text{Electromouillage}} = \frac{\epsilon_0 \epsilon_d w}{2} \frac{d}{d} [(V - V_0)^2 + V_1^2 - (V - V_2)^2 - V_3^2] \quad (1)$$

tandis que la dérivée de l'énergie électrostatique stockée hors de la couche diélectrique (le liquide et l'air) représente la force de diélectrophorèse :

$$F_{\text{Dielectrophorese}} = \frac{\epsilon_0}{2} \frac{K(1-k^2)}{K(k^2)} [\epsilon_L (V_0 - V_1)^2 - (V_2 - V_3)^2] \quad (2)$$

avec K l'intégrale elliptique du premier type et k un paramètre géométrique introduit par Jones [3] :

$$k = \frac{g}{g + 2w} \quad (3)$$

Le schéma électrique équivalent est utilisé par Chatterjee et Garell [1] pour calculer l'énergie électrostatique du système en fonction de la longueur du filet. La géométrie étudiée par ces auteurs ne correspond pas exactement à notre problème, mais le calcul des capacités dans le cas qui nous occupe a été rapporté par Jones [3]. En ce qui concerne la force résistive due aux effets de la tension de surface, elle est décrite par le même Jones dans une autre publication [2], qui toutefois néglige les pertes résistives dans le liquide (R_L est supposé nul). La synthèse de ces différents travaux a été proposée par Renaudot, dans un travail encore en cours d'évaluation pour la revue Micromachines, et dont nous donnons ici le résultat, à savoir le seuil de tension électrique V_{\min} sous lequel il ne peut y avoir d'étirement de la protrusion (le facteur $2\sqrt{2}$ permet d'exprimer V_{\min} comme une tension mesurée de pic à pic) :

$$V_{\min}^2 = \left(2\sqrt{2}\right)^2 \frac{2\pi\gamma(2w+g)}{\epsilon_0} \cdot \frac{1}{\mathcal{F}} \quad (4)$$

expression dans laquelle ϵ_0 représente la permittivité du vide et \mathcal{F} est une fonction de la géométrie, des matériaux, du liquide utilisé et de la fréquence du signal électrique, définie de la manière suivante :

$$\mathcal{F} = \frac{1}{\frac{1}{w} \cdot \frac{d}{\epsilon_d} + \frac{K(k^2)}{K(1-k^2)} \cdot \frac{1}{\epsilon_L \sqrt{1 + \left(\frac{\sigma_L}{2\pi f \epsilon_0 \epsilon_L}\right)^2}}} - \frac{1}{\frac{1}{w} \cdot \frac{d}{\epsilon_d} + \frac{K(k^2)}{K(1-k^2)}} \quad (5)$$

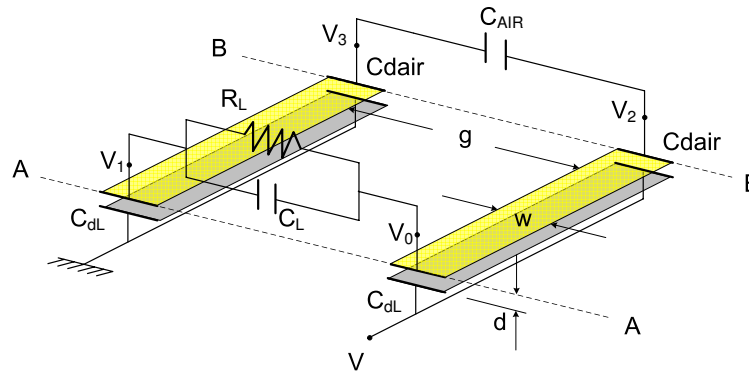


FIG. 3 – Schéma électrique équivalent du dispositif expérimental de LDEP : la coupe A-A représente une section dans le filet liquide, la coupe B-B représente une section dans l'air, à l'avant du front de filet liquide (le filet n'est pas représenté ici). Les éléments électriques équivalents sont une résistance R_L et une capacité C_L pour le liquide, une capacité C_{air} pour l'air, deux capacités C_{dL} pour la couche diélectrique mouillée par le filet et deux capacités C_{dair} pour la couche diélectrique exposée à l'air.

Nous proposons d'étudier ici l'effet de la mouillabilité de la couche superficielle, cette dernière étant mesurée par l'angle de contact θ formé par le liquide déposé sur la couche superficielle. Une telle étude a déjà été menée partiellement par Chatterjee [1], mais les résultats de cet auteur sont basés sur des angles de contact obtenus sur des couches diélectriques présentant des propriétés diélectriques différentes. L'effet attribué à l'angle de contact ne peut être séparé de l'effet de la couche diélectrique.

4 Méthodologie

On peut faire varier l'angle de contact en modifiant la tension de surface du liquide ou l'énergie de surface de la couche superficielle (équation de Young-Dupré). Si l'on veut séparer l'effet de la tension de surface de l'effet de l'angle de contact, il est nécessaire de faire varier simultanément ces deux paramètres. L'énergie de surface de la couche superficielle peut être modifiée en changeant le matériau diélectrique qui est déposé sur les électrodes, mais on risque alors de faire varier en même temps les propriétés diélectriques. Nous avons donc préparé deux substrats, recouverts tous les deux d'une couche d'environ 500nm de résine SU8, l'un des deux seulement étant recouvert ensuite d'une fine couche fluorée d'une vingtaine de nanomètres. D'un point de vue diélectrique, la capacité de ces deux couches diélectriques est assez voisine, mais conduit à des angles de contact très différents.

La tension de surface d'eau déionisée est abaissée par l'adjonction de surfactant tween20 et mesurée à l'aide de la technique dite de la goutte pendante. L'angle de contact est mesuré sur une photo prise d'une goutte de liquide posée sur la couche diélectrique, exactement à l'endroit où l'on génère la protrusion pendant l'expérience, et ce, à la fois avant et après l'expérience. La tension de surface et l'angle de contact ont été mesurés avec un équipement de type Dropmaster.

On a fait varier la tension de surface, l'angle de contact et la fréquence de la tension électrique simultanément, en appliquant la méthodologie des plans d'expériences, au sein d'un plan factoriel complet à 3 paramètres de deux niveaux chacun (figure 4). Cette méthodologie repose sur le choix optimisé des points expérimentaux dans le but de maximiser la qualité de l'information tirée d'un nombre donné d'expériences, et sur le post-traitement statistique des résultats obtenus afin de déterminer les paramètres ayant un effet significatif sur la réponse mesurée (dans notre cas la tension électrique appliquée). En particulier, et contrairement à l'approche intuitive consistant à faire varier chaque paramètre à la fois, tous les paramètres sont modifiés simultanément, ce qui permet de détecter les interactions entre les paramètres, comme illustré par la réponse en forme de selle de cheval donnée à la figure 5.

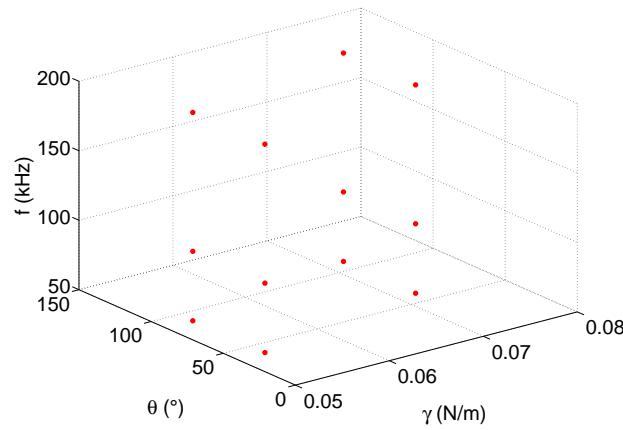


FIG. 4 – Espace expérimental associé à l'étude des effets de la tension de surface $\gamma = 52.9 - 72 \text{ mNm}^{-1}$, de l'angle de contact $\theta = 40 - 110^\circ$ et de la fréquence $f = 50 - 200 \text{ kHz}$

5 Résultats

Nous présentons ici les résultats de notre étude sur l'influence de la tension de surface, l'angle de contact et la fréquence sur la tension minimale permettant de générer le filet liquide.

L'analyse des résultats expérimentaux est synthétisée dans le tableau 1, qui reprend les effets et les interactions des paramètres définis par le modèle empirique suivant :

$$V_{\min} = a_0 + A\gamma + B\theta + Cf + AB\gamma\theta + AC\gamma f + BC\theta f \quad (6)$$

Cette analyse met en évidence les effets de la tension de surface, de l'angle de contact ainsi que leur interaction (la probabilité p indiquée dans la dernière colonne du tableau représente la probabilité d'observer ces effets par hasard : par conséquent, une faible valeur de cette probabilité indique que le résultat observé n'est pas le fruit du hasard, mais bien dû à la variation d'un paramètre qui peut être considéré comme significatif).

	SS	DoF	MS	F Value	p-value
Modèle	98.28	6	16.38	48.15	< 0.0001
A-γ	66.15	1	66.15	194.45	< 0.0001
B-θ	4.34	1	4.34	12.76	0.0013
C-f	$9 \cdot 10^{-6}$	1	$9 \cdot 10^{-6}$	$2.6 \cdot 10^{-5}$	0.9959
AB	45.11	1	45.11	132.61	< 0.0001
AC	0.25	1	0.25	0.75	0.3949
BC	0.01	1	0.010	0.031	0.8618
Residual	9.87	29	0.34		
Lack of Fit	1.47	5	0.29	0.84	0.5363
Pure Error	8.40	24	0.35		

TAB. 1 – Résultats de l'analyse de la variance conduite à partir des résultats expérimentaux : SS indique la somme des carrés, DoF le nombre de degrés de liberté, MS le carré moyen, F la variable de Fisher construite comme le ratio du carré moyen associé au paramètre testé et du carré moyen des résidus, qui est une mesure de la dispersion expérimentale.

Le rôle de la fréquence mérite d'être discuté. Ce paramètre n'a apparemment pas d'effet dans notre étude, alors qu'il est clairement repris dans tous les modèles de la littérature, dont l'équation 4. L'absence apparente d'effet doit ici être comprise par rapport à notre dispersion expérimentale : cela

signifie que par rapport au bruit de mesure, la variation de la fréquence est trop faible pour induire un effet qui soit significativement supérieur au bruit de mesure. Malheureusement, nous n'avons pas pu augmenter la fréquence au-dessus de 200 kHz en raison des limites de notre amplificateur ni diminuer la fréquence sous 10 kHz, ce qui provoque le claquage de la couche diélectrique. Par conséquent, comme la fréquence n'a pas d'effet au sein de notre domaine d'étude, on peut ignorer ce paramètre et représenter la tension minimale pour générer la protrusion en fonction de la tension de surface et de l'angle de contact (figure 5). Le modèle empirique associé est du type :

$$\hat{V}_{\min} = a_0 + a_1\gamma + a_2\theta + a_{12}\gamma\theta \quad (7)$$

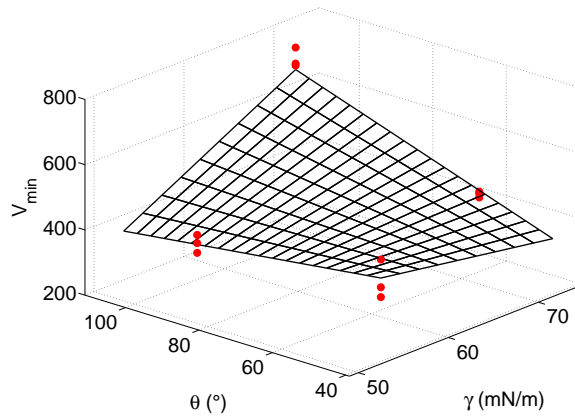


FIG. 5 – Représentation graphique des effets de γ et θ sur V_{\min} : l'allure typique en selle de cette surface indique l'interaction qui existe entre les paramètres γ et θ .

On voit que pour une valeur de la tension de surface typique de l'eau (72mN/m), le choix d'un faible angle de contact peut diminuer considérablement la tension électrique requise pour générer le filet. Par contre, pour des tensions de surface plus faibles, la mouillabilité semble ne pas avoir d'effet, mais cette conclusion doit être nuancée par l'utilisation de surfactant dans un régime dynamique très rapide qui mérite probablement une étude plus approfondie.

6 Conclusions

Par rapport à la littérature, nous avons montré expérimentalement dans cet article que l'effet de la mouillabilité sur le fonctionnement du procédé de LDEP était significatif. Cela signifie qu'un choix judicieux de la couche superficielle peut abaisser considérablement la tension électrique requise pour générer un filet de liquide à base d'eau. Pour des liquides contenant du surfactant Tween20, il semble que la mouillabilité n'ait pas le même effet, mais ceci doit faire l'objet d'une étude approfondie. On s'attachera également à proposer une modélisation analytique qui rende compte de l'effet de l'angle de contact sur la tension d'actionnement.

Remerciements

Les auteurs remercient les Dr M. Kumemura et Dr L. Jalabert.

Références

- [1] Debalina Chatterjee, Heather Shepherd, and Robin L Garrell. Electromechanical model for actuating liquids in a two-plate droplet microfluidic device. *Lab on a chip*, 9(9) :1219–29, May 2009.
- [2] T B Jones. Dynamics of Dielectrophoretic Liquid Microactuation. volume 14627, pages 1–8, 2001.
- [3] T B Jones, M Gunji, M Washizu, M J Feldman, and I Introduction. Dielectrophoretic liquid actuation and nanodroplet formation. *Journal of Applied Physics*, 89(2) :1441–1448, 2001.
- [4] Patrick M. Young and Kamran Mohseni. Calculation of DEP and EWOD Forces for Application in Digital Microfluidics. *Journal of Fluids Engineering*, 130(8) :081603, 2008.